

电疲劳对掺镧锆钛酸铅陶瓷电致畴变行为的影响

杨凤娟¹, 程 璇^{2,3}, 张 颖^{2,3}

(1. 华侨大学厦门工学院, 福建 厦门 361021; 2. 厦门大学材料学院, 福建 厦门 361005;
3. 福建省特种先进材料重点实验室, 福建 厦门 361005)

摘 要: 在不同电疲劳周次下, 对未极化掺镧锆钛酸铅铁电陶瓷在不同直流电场加载下得到的原位 X 射线衍射(XRD)谱和撤掉不同直流电场后得到的非原位 XRD 谱的(002)与(200)晶面衍射峰强与电场强度(E_A)的关系进行研究。通过计算 90°畴变体积分数发现, 在电疲劳过程中, 电场撤掉前后的 90°畴变体积分数均随 E_A 呈蝶形曲线变化。在低电场作用下, 铁电畴更趋向于沿平行试样表面方向, 而在 $E_A=2\ 000\ \text{V/mm}$ 作用下, 当电疲劳至 10^6 时, 材料中有约 5%的铁电畴被钉扎, 有约 6%的铁电畴在电场撤掉瞬间转回平行试样表面方向。电场撤掉后的 90°畴变体积分数能直接反映铁电材料剩余极化程度。

关键词: 掺镧锆钛酸铅; 原位 X 射线衍射; 电疲劳; 畴变; 电场加载; 撤掉电场

中图分类号: TB321 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2015)03-0292-08

网络出版时间: 2015-03-06 9:54:53

网络出版地址: <http://www.cnki.net/kcms/detail/11.2310.TQ.20150306.0954.002.html>

Effect of Electric Fatigue on Electric-Induced Domain Switching for Lanthanum-doped Lead Zirconate Titanate Ceramics

YANG Fengjuan¹, CHENG Xuan^{2,3}, ZHANG Ying^{2,3}

(1. Xiamen Institute of Technology Huaqiao University, Xiamen 361021, Fujian, China; 2. Department of Materials Science & Engineering, College of Materials, Xiamen University, Xiamen 361005, Fujian, China; 3. Fujian Key Laboratory of Advanced Materials, Xiamen University, Xiamen 361005, Fujian, China)

Abstract: The variations of intensity values for (002) and (200) diffraction peaks from X-ray diffraction measurements with and without applied electric fields (E_A) for unpoled lanthanum-doped lead zirconate titanate (PLZT) ceramics were investigated during the different cycle numbers of electric fatigue. The results show that the relations between 90° domain switching content (in volume) and the magnitude of E_A in the presence and absence of E_A during the electric fatigue are typical butterfly-curve modes. Also, the domains parallel to the sample surface are more stable at lower E_A . When $E_A=2\ 000\ \text{V/mm}$ and the cycle number of electric fatigue is 10^6 , the pinning of 5% domain walls occurs. However, 6% domains instantly return to the direction parallel to the sample surface without E_A . The 90° domain switching content without E_A can be used to show the degree of remanent polarization.

Key words: lanthanum-doped lead zirconate titanate; *in-situ* X-ray diffraction; electric fatigue; domain switching; application of electric field; removal of electric field

掺镧锆钛酸铅(PLZT)铁电材料具有优良的力电耦合效应和对外场迅疾反应的能力, 已被广泛应用于非易失性器件及微执行器中。然而, 铁电陶瓷材料在经过循环往复、甚至高频交变电场和力场周期性加载后导致的疲劳失效严重阻碍了其推广应用。为了提高铁电材料的抗疲劳性能, 人们对影响疲劳过程的成分^[1-2]、温度^[2]、掺杂^[3]、周围气氛^[4]、电

极^[5], 以及电场强度和频率^[6]等诸多因素进行了大量研究。但由于研究手段不完善, 关于疲劳的起因和机制还未能给出一个明确的说法, 且时常彼此矛盾。目前人们普遍认为, 铁电陶瓷材料的畴变引起的结构变化是导致材料性能衰变和破坏的主要原因, 寻找新的分析方法研究铁电畴变规律是阐明其性能退化机理的重要手段。

收稿日期: 2014-11-22。 修订日期: 2014-12-03。

基金项目: 国家自然科学基金(11372263)资助项目。

第一作者: 杨凤娟(1983—), 女, 博士, 讲师。

Received date: 2014-11-22. Revised date: 2014-12-03.

First author: YANG Fengjuan(1983—), female, Ph.D., Lecturer.

E-mail: funfunyang@126.com

近年来,人们利用压电响应力显微镜观察到 PZT 基铁电材料在电疲劳过程中畴花样的演化过程^[7-9]以及疲劳后纳米畴极化冻结区域的形成和存在^[7-8]。然而,这种方法只能定性得到畴结构尺寸和形貌的相关信息,定量计算难且不直观。此外,Zhang 等^[10]利用原位 Raman 光谱技术初步研究了 PLZT 铁电陶瓷 Raman 谱峰强度和电疲劳循环次数之间的关系,但由于多晶铁电陶瓷畴取向的多样性造成纯对称性的光学振动模之间互相耦合^[11]导致 Raman 谱峰出现严重的宽化和重叠,对 Raman 峰位和强度的定量分析造成极不利的影响。X 射线衍射(XRD)技术已应用于外场下的 90°畸变观测,近年来又有了新的进展。Liu 等^[12-13]通过对斜方相 PZT-5H 陶瓷材料在低于矫顽场的不同直流电场和不同幅值的交流电场作用下 XRD 谱变化的研究指出:该材料除了发生电致畸变,还可能存在电致相变。上述研究中施加的直流电场不超过铁电材料的矫顽场,可能造成铁电畸变不充分,从而无法全面了解铁电材料的畸变行为。张颖等^[14]利用 XRD 技术观察了电疲劳过程中极化 PLZT 试样表面铁电畴的变化。但由于 XRD 谱是在不同直流电场加载后撤掉电场时得到的,只能反映铁电材料剩余极化的影响,缺乏对电场加载时的极化行为进行现场研究。刘莹等^[15]通过 PLZT 铁电陶瓷在电场加载下和撤掉电场后 XRD 谱的观察,分析了 2 种情况下的 90°畸变行为,但对电疲劳过程中外加电场卸载前后铁电陶瓷电致畸变行为进行原位对比的研究还鲜见报道。

利用自制的原位电加载装置^[16]并与常规的 X 射线衍射仪联用,对未极化 PLZT 试样进行不同周次的电疲劳加载,在每次达到相应疲劳周次时,获得了不同直流电场加载下和撤掉电场后的原始 XRD 谱,初步研究了(002)和(200)衍射峰强与外加电场强度的关系,通过计算 90°畸变体积分数,对 2 种情况下电疲劳过程中 90°畸变能力的变化进行了定量分析和原位对比,探讨了铁电材料电疲劳性能衰败和破坏的原因。

1 实验

用江西景德镇景华无线电器材厂提供的 Zr/Ti (摩尔比约为 52:48)位于准同型相界附近的 PLZT 铁电陶瓷材料,La 和 Nb 的掺杂量约为 3%,其空间群为 $P4mm$, $a=0.4017\text{ nm}$, $c=0.4092\text{ nm}$, $c/a=1.0186$ 。试样尺寸为 $0.5\text{ mm}\times 10\text{ mm}\times 12\text{ mm}$,在 $10\text{ mm}\times 12\text{ mm}$ 两个表面有厚度为 $1\sim 2\text{ }\mu\text{m}$ 的 Ag 电极。为了

获得试样表面的 XRD 信息,首先将实验观察面上的 Ag 电极用稀硝酸洗掉,再将该表面进行喷金处理,镀上一层约 20 nm 厚的 Au 电极。为了实现外加电场下畸变的原位观测,同时防止高电压下两电极间发生表面放电,影响实验观测和设备安全,对试样两边电极进行去边处理以达到绝缘保护的目的。

用 D/Max-RC 型衍射仪进行 XRD 测试,工作功率为 $40\text{ kV}\times 40\text{ mA}$ 。利用自制的电加载装置^[16],采用 $900\cdot\sin(100\pi t)(\text{V/mm})$ 的正弦波对未极化 PLZT 试样进行不同周次(N)的电疲劳加载,加载顺序为 $N=0\rightarrow 10^4\rightarrow 10^5\rightarrow 10^{5.5}\rightarrow 10^{5.8}\rightarrow 10^6$ 。在每次达到相应疲劳周次时,进行电滞回线测试,随即对试样施加不同的直流电场强度(E_A),加载顺序分别为: $E_A=2\ 000\rightarrow 0, 0\rightarrow -2\ 000, -2\ 000\rightarrow 0, 0\rightarrow 2\ 000\text{ V/mm}$ 。在每个 E_A 作用下和撤掉 E_A 作用后分别进行 XRD 测试,扫描范围为 $43^\circ\leq 2\theta\leq 45.5^\circ$,扫描速率为 $0.5^\circ/\text{min}$ 。用 LEO 1530 型场发射扫描电子显微镜观察试样的形貌,试样经过喷金处理,喷金时间约 25 s 。

2 结果与讨论

2.1 显微结构分析

图 1 为未极化 PLZT 试样的表面和断面形貌。从表面和断面形貌对比可知,试样表面及内部的晶粒分布均匀且较致密,颗粒尺寸为 $1\sim 3\text{ }\mu\text{m}$ 。试样断

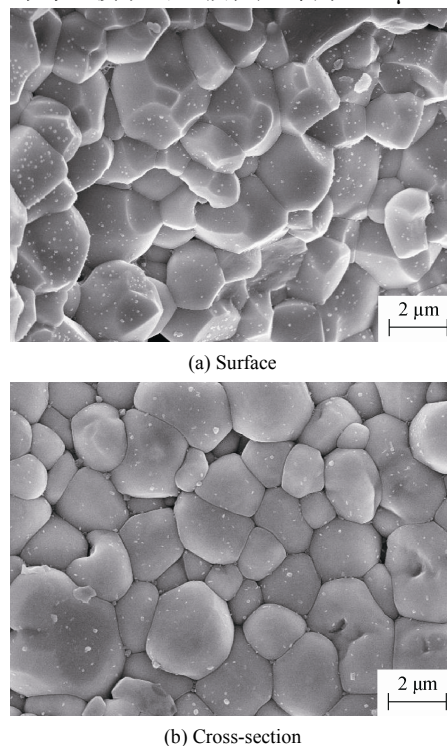


图 1 PLZT 未极化试样的形貌
Fig. 1 Morphologies of unpoled lanthanum-doped lead zirconate titanate (PLZT) specimen

面处的晶粒较完整, 断裂模式主要为沿晶断裂。

2.2 原位测试

图 2 为未经疲劳的未极化 PLZT 试样在不同直流电场循环加载过程中得到的原位 XRD 谱。图 3 为对应相同电场作用下撤掉电场后得到的非原位 XRD 谱。对比图 2 和图 3 可以看出, 当施加直流电场强度从 $2\,000 \rightarrow 0 \rightarrow -2\,000 \rightarrow 0 \rightarrow 2\,000$ V/mm 循环 7 d 时, 原位 XRD 谱中(002)和(200)衍射峰强(见图 2)比非原位 XRD 谱的(002)和(200)衍射峰强(见图 3)变化更明显。对于四方相的 PLZT 铁电材料, XRD 谱中(002)峰强($I_{(002)}$)和(200)峰强($I_{(200)}$)分别反映了垂直和平行于试样观察面的电畴含量^[12–14,17–18]。由于 XRD 无法区分极化方向相反的铁电畴^[19], 因此, $I_{(002)}$ 与 $I_{(200)}$ 的变化只能反映垂直和平行于试样观察面电畴的变化, 即 90° 畴变^[12–14,17–18]。由图 2a 可见, 当 E_A 从 $2\,000$ V/mm 逐渐减小至 0 时, $I_{(002)}$ 逐渐减小, 而 $I_{(200)}$ 逐渐增大, 说明材料中有部分电畴由垂直于试样观察面逐渐转向平行于试样观察面。由图

2b 可见, 当 E_A 由正电场变成负电场并逐渐增加时, $I_{(002)}$ 继续减小, $I_{(200)}$ 却继续增加, 说明材料中更多电畴由垂直于试样观察面转向平行于试样观察面, 但当 E_A 达到或超过材料的矫顽场($E_C=800$ V/mm)时, $I_{(002)}$ 开始急剧增加, 而 $I_{(200)}$ 却急剧减小, 说明此时材料当中发生了大量的电畴由平行于试样观察面转向垂直于试样观察面的 90° 畴变, 即大量铁电畴的极化方向翻转到了与电场一致的方向。而由图 2c 和图 2d 可以看出, $I_{(002)}$ 和 $I_{(200)}$ 的相对变化趋势分别与上述 $E_A=2\,000 \rightarrow 0$ 和 $E_A=0 \rightarrow -2\,000$ V/mm 的情况相似, 说明材料在不同 E_A 下发生了不同程度的 90° 畴变。由于剩余极化的影响, 与图 2 中加载顺序为 $E_A=2\,000 \rightarrow 0, 0 \rightarrow -2\,000, -2\,000 \rightarrow 0, 0 \rightarrow 2\,000$ V/mm 相对应的原位 XRD 谱变化相比, 撤掉电场后, $I_{(002)}$ 和 $I_{(200)}$ 的相对变化幅度(见图 3)明显减小, 说明试样在电场作用下发生的 90° 畴变, 在撤掉电场后有所恢复, 90° 畴变程度明显降低, 最终导致不同电场加载后撤掉电场时的 XRD 谱变化不明显。

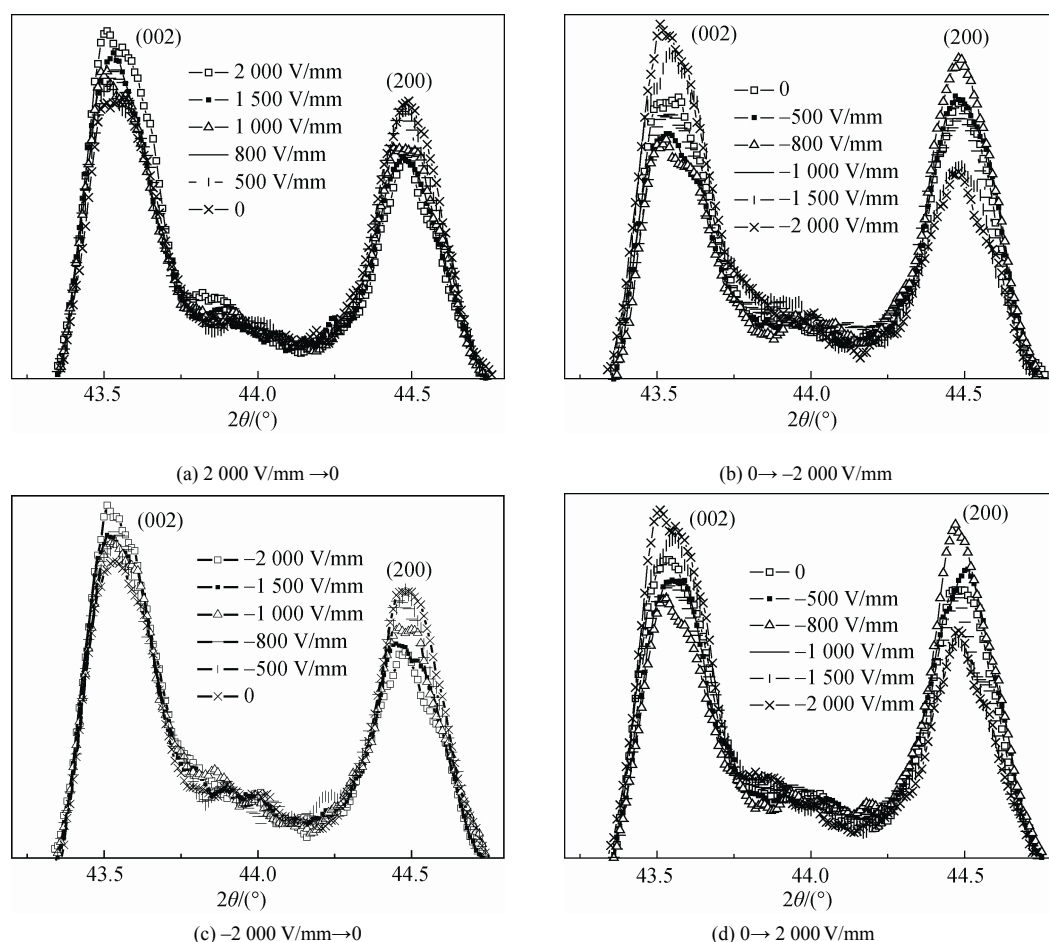


图 2 不同直流电场作用下未疲劳 PLZT 试样的原位 XRD 谱
Fig. 2 *In-situ* XRD patterns for non-fatigued unpoled PLZT under applications of direct electric fields

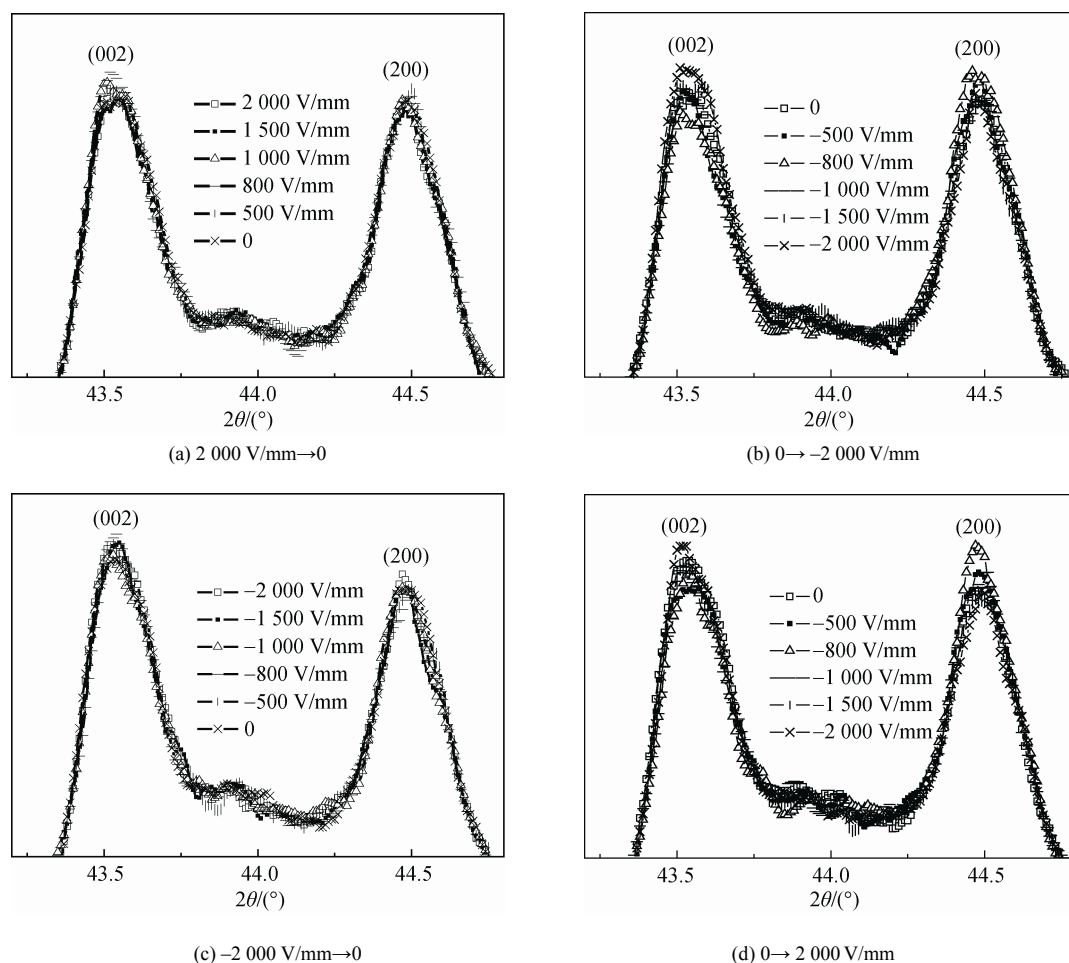


图 3 不同直流电场作用下未疲劳 PLZT 试样的非原位 XRD 谱
Fig. 3 *Ex-situ* XRD patterns for non-fatigued unpoled PLZT under applications of direct electric fields

图 4a 为未极化试样电疲劳过程中的电滞回线。由图 4a 可以看出, 未极化试样的剩余极化强度(P_r)随着电疲劳次数(N)的增加而逐渐减小。图 4b 为对图 4a 中的 P_r 进行归一化处理后得到的 P_r^N/P_r^0 随 N 变化曲线。由图 4b 可知, 当电疲劳至 $N=10^6$ 时, 未极化试样的剩余极化强度比未疲劳时下降了约 50%, 材料发生了明显的电疲劳现象。

2.3 定量分析

图 5 为未极化 PLZT 试样疲劳前($N=0$)和疲劳后($N=10^6$)(002)和(200)衍射峰位置随外加电场变化曲线。由图 5 可见, 疲劳前后(002)和(200)衍射峰位不仅在电场作用下随不同电场强度基本保持不变(黑线), 而且在撤掉加载电场后的位置也基本保持不变(红线)。由于衍射峰位反映了相关晶面间距, 因此可以认为在外加电场作用下, 试样的四方相结构的晶面间距没有发生显著变化, 即电致伸缩效应不明显。

当电疲劳循环次数为 N 时, 在电场强度 E_A 作用下, 试样表面 90° 畴变体积分数的^[14]为:

$$\beta^{\text{in}}(E_A, N) = \frac{R^{\text{in}}(E_A, N) - R(0, N)}{[1 + R^{\text{in}}(E_A, N)][1 + R(0, N)]} \quad (1)$$

$$\beta^{\text{ex}}(E_A, N) = \frac{R^{\text{ex}}(E_A, N) - R(0, N)}{[1 + R^{\text{ex}}(E_A, N)][1 + R(0, N)]}$$

其中: $R(0, N)$ 为在电疲劳 N 次后试样的(002)和(200)峰强比; $R^{\text{in}}(E_A, N)$ 为电疲劳 N 次后试样在受强度为 E_A 的直流电场作用下的试样(002)和(200)峰强比; $R^{\text{ex}}(E_A, N)$ 为电疲劳 N 次后试样在受强度为 E_A 的直流电场作用后撤掉电场情况下试样的(002)和(200)峰强比。在电场作用下试样的 90° 畴变体积分数为 $\beta^{\text{in}}(E_A, N)$, 而受电场作用后撤掉电场下试样的 90° 畴变体积分数为 $\beta^{\text{ex}}(E_A, N)$ 。由于垂直试样表面铁电畴的增加意味着平行试样表面铁电畴的减少, 即发生了 90° 畴变, 因此, $\beta^{\text{in}}(E_A, N)$ 或 $\beta^{\text{ex}}(E_A, N)$ 代表了在电场强度 E_A 作用下或撤掉电场后试样表面发生 90° 畴变的材料所占的分数。图 6 为未极化试样受到电场作用后保留和撤掉电场时 90° 畴变体积分数的^[14]与疲劳周次 N 的变化曲线。

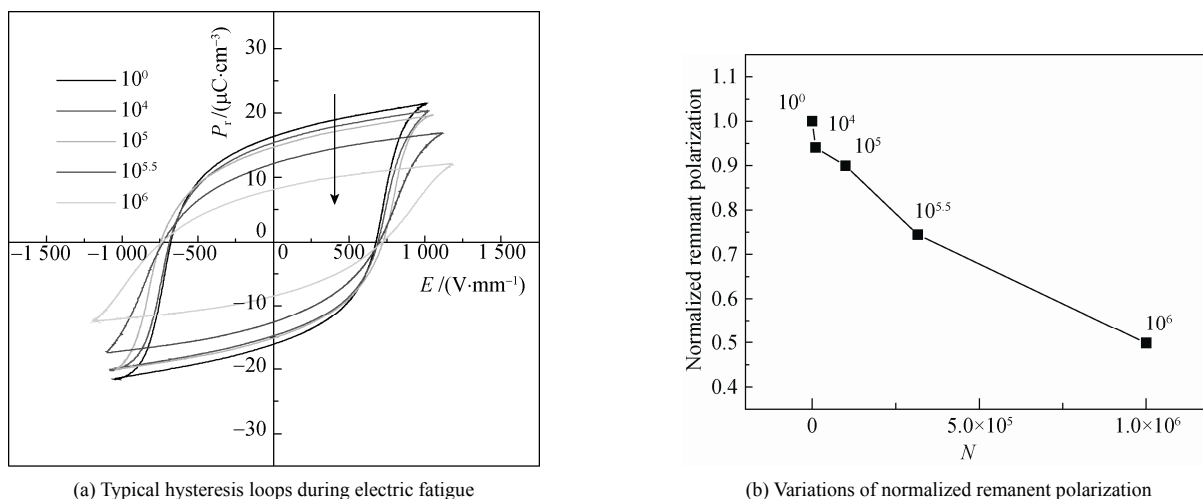


图 4 电疲劳过程中测试得到的未极化试样电滞回线和经归一化处理得到的剩余极化强度随电疲劳次数变化曲线

Fig. 4 Typical hysteresis loops measured during applications of electric fatigue and variations of the normalized remanent polarization with different cycle numbers for unpoled PLZT

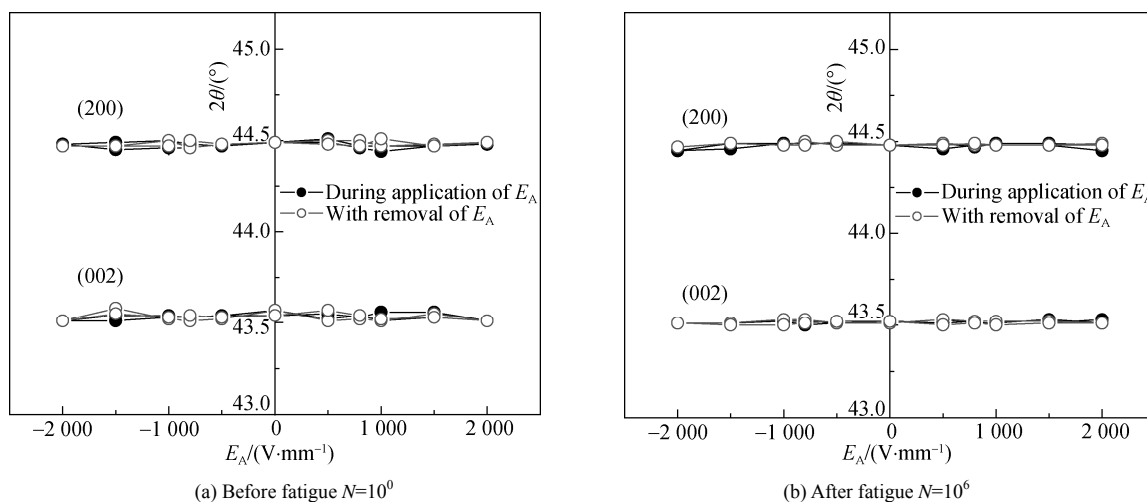


图 5 疲劳前和疲劳后未极化试样(002)和(200)衍射峰位置随电场强度变化曲线

Fig. 5 Variations of (002) and (200) diffraction peak positions with electric field for non-fatigue and fatigue unpoled PLZT

由图 6a~图 6e 可见, 不同电疲劳周次下, $\beta^n(E_A, N)$ 和 $\beta^x(E_A, N)$ 均随 E_A 呈典型的蝶形曲线变化规律。当 $N=10^0$ 时, $\beta^n(E_A, N)$ 在 E_A 超过 E_C 后急剧上升, $\beta^n(2\,000\text{ V/mm}, N)$ 高达 15% 左右, 表明铁电材料在 $E_A=2\,000\text{ V/mm}$ 的作用下约有 15% 的铁电畴将从平行试样表面翻转至垂直试样表面方向。随着电疲劳次数的增加, $\beta^n(E_A, N)$ 的增大速率逐渐变缓, 蝶形曲线变化幅度也逐渐减小。当疲劳至 $N=10^6$ 时, $\beta^n(2\,000\text{ V/mm}, N)$ 减少到 10% 左右, 表明在这种情况下, 只有约 10% 铁电畴可以从平行试样表面翻转到垂直试样表面方向, 相比 $N=10^0$ 时, 有约 5% 的铁电畴不再参与电畴翻转。这种变化趋势与相应的电滞回线(见图 4a)是一致的, 即对未疲劳试样, 极化强度在 E_C 附近呈接近陡直曲线上升, 表明大量的铁

电畴发生翻转, 而随着电疲劳的进行, 逐渐变得平缓, 说明可翻转的铁电畴逐渐减少。90°畴变体积分分数变化的蝶形曲线所包围的面积逐渐减小, 说明随着电疲劳的进行, 在 E_A 作用下试样表面可翻转铁电畴数量逐渐减少, 90°畴变能力逐渐下降, 导致铁电性能逐渐劣化。随着电疲劳次数的增加, 蝶形曲线在 E_C 附近的转折点逐渐变得弥散。对于多晶多畴铁电体, 各个铁电畴都可能受到应力场或电场的作用。在确定的畴变准则^[20]下, 应力场和电场的耦合作用可能引起铁电畴的翻转。由于每个铁电畴取向不同, 其所经历的应变和极化强度的变化便有所不同, 随着疲劳的进行, 部分铁电畴逐渐被钉扎, 这些都将导致各个铁电畴发生畴变的势垒呈一定分布状态, 进而各个铁电畴的矫顽场也在一定范围内分布, 形

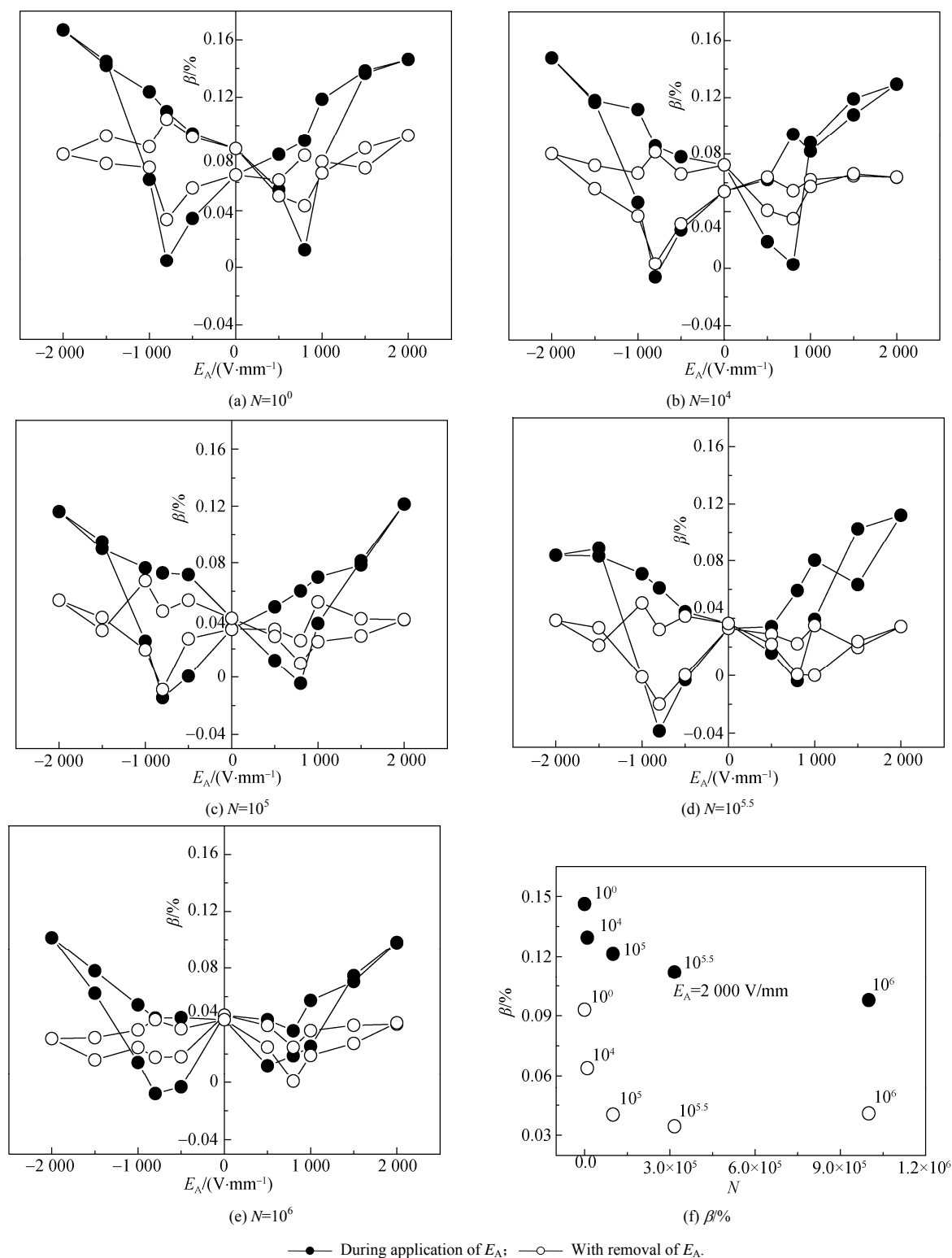


图 6 未极化 PLZT 试样电疲劳过程中电场作用下和撤掉电场后的 90° 畴变体积分数随电场强度和电疲劳次数变化曲线
Fig. 6 Variations of 90° domain switching content (in volume) with magnitude of electric field and number of electric fatigue cycle under application and by removal of electric field during electric fatigue for unpoled PLZT specimens

成如图 6e 中实心符号连线所示的弥散峰。

比较图 6a~6e 还发现, $\beta^x(E_A, N)$ 曲线变化范围比 $\beta^n(E_A, N)$ 曲线小得多。理论上施加不同电场强度后撤掉电场时的铁电畴均处于剩余极化状态, 即

$\beta^x(E_A, N)$ 反映了撤掉电场后铁电畴剩余极化状态的 90° 畴变体积分数。由图 6a~6e 可见, 当从 $E_A=2000 \text{ V/mm}$ 和 $E_A=-2000 \text{ V/mm}$ 分别下降至 $E_A=0$ 过程中, $\beta^x(E_A, N)$ 基本保持不变, 说明此时不同电场

加载下的剩余极化状态的 90° 畴变体积分数相等。由于这两个电场变化过程相当于同向电场的卸载过程, 即电畴的择优取向与电场方向一致, 只是电场强度从最大值逐步降低到零, 因此在这两个过程中剩余 90° 畴变体积分数 $\beta^x(E_A, N)$ 与所施加电场强度无关。比较此过程的 $\beta^n(E_A, N)$ 和 $\beta^x(E_A, N)$ 可见, 当撤除电场后, 部分电畴的取向会自发地转向平行于试样表面。而对于反向加载, 即从 $E_A=0$ 增加到 $E_A=2\ 000\text{ V/mm}$ 或 $E_A=-2\ 000\text{ V/mm}$ 时, 剩余的 90° 畴变体积分数 $\beta^x(E_A, N)$ 呈现出两种不同的变化趋势。在这个电加载过程中, 电场的方向与初始时 ($|E_A|=0$) 电畴择优取向相反, 而施加反向电场意味着试图反转电畴的择优取向。当电场强度 $|E_A|$ 从零增加到 $|E_C|$ 时, $\beta^n(E_A, N)$ 和 $\beta^x(E_A, N)$ 逐渐减小, 表明此时越来越多的铁电畴从垂直试样表面翻转到平行试样表面, 而且在撤掉电场后不易改变。当电场强度 $|E_A|$ 超过 $|E_C|$ 时, $\beta^n(E_A, N)$ 和 $\beta^x(E_A, N)$ 也逐渐增大, 直至在 $|E_A|=2\ 000\text{ V/mm}$ 时达到最大值, 表明越来越多的铁电畴由平行于试样观察面逐渐转向电场方向(垂直于试样观察面)。而 $\beta^n(E_A, N)$ 和 $\beta^x(E_A, N)$ 的差别表明, 当电场强度 $|E_A|$ 超过 $|E_C|$ 时, 如撤除电场, 部分电畴的取向会恢复到平行于试样观察面的方向。

随着电疲劳次数的增加, $\beta^x(E_A, N)$ 曲线的变化范围比 $\beta^n(E_A, N)$ 小, 表明电疲劳加载对 PLZT 铁电材料在撤掉电场后的 90° 畴变行为影响较小。由图 6f 可以看出, 当疲劳至 $N=10^6$ 时, $\beta^n(2\ 000\text{ V/mm}, N)$ 减少至约 10%, 而此时 $\beta^x(2\ 000\text{ V/mm}, N)$ 只剩下约 4%, 表明未极化试样在疲劳后有约 6% 垂直于试样观察面的铁电畴在电场撤掉瞬间转回平行试样表面方向。与未疲劳时相比, $\beta^n(2\ 000\text{ V/mm}, N)$ 和 $\beta^x(2\ 000\text{ V/mm}, N)$ 分别减少了约 33% 和 55%, 说明电疲劳对剩余极化的影响更明显。由图 4 可见, 未极化试样在电疲劳至 10^6 时的剩余极化强度 P_r 比未疲劳时下降了约 50%, 说明 90° 畴变能力的衰减直接导致电疲劳过程中铁电陶瓷性能的衰败和破坏。

3 结论

对未极化 PLZT 试样在电疲劳过程中施加不同直流电场强度和撤掉电场后分别进行原位和非原位 XRD 实验, 得到(002)与(200)衍射峰强与电场强度 (E_A) 的关系。通过计算 90° 畴变体积分数发现, $\beta^n(E_A, N)$ 和 $\beta^x(E_A, N)$ 均随 E_A 呈蝶形曲线变化规律。 $\beta^x(E_A, N)$ 的变化可直接反映铁电材料剩余极化程

度的变化。在低电场作用下铁电畴更趋向于沿平行试样表面方向取向, 而在 $E_A=2\ 000\text{ V/mm}$ 作用下, 当电疲劳至 10^6 时, 材料中有约 5% 的铁电畴被钉扎, 并且有约 6% 的垂直于试样表面的铁电畴在电场撤掉瞬间转回平行试样表面方向。

参考文献:

- [1] TAYLOR G W. Electrical properties of niobium-doped ferroelectric $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Sn}, \text{Ti})\text{O}_3$ ceramics[J]. J Appl Phys, 1967, 38: 4697–4706.
- [2] JIANG Q Y, SUBBARAO E C, CROSS L E. Effect of composition and temperature on electric fatigue of La-doped lead zirconate titanate ceramics[J]. J Appl Phys, 1994, 75: 7433–7443.
- [3] CHEN J, HARMER M P, SMYTH D M. Compositional control of ferroelectric fatigue in perovskite ferroelectric ceramics and thin films[J]. J Appl Phys, 1994, 76: 5394–5398.
- [4] BRAZIER M, MANSOUR S, MCELFRISH M. Ferroelectric fatigue of $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ thin films measured in atmospheres of varying oxygen concentration[J]. Appl Phys Lett, 1999, 74: 4032–4033.
- [5] FRASER D B, MALDONADO J R. Improved aging and switching of lead zirconate-lead titanate ceramics with indium electrodes[J]. J Appl Phys, 1970, 41: 2172–2176.
- [6] 白辰阳, 桂治轮, 李龙土. 铁电陶瓷的电疲劳机理研究[J]. 功能材料, 1999, 30: 515–517.
BAI Chenyang, GUI Zhilun, LI Longtu. J Funct Mater(in Chinese), 1999, 30: 515–517.
- [7] GRUVERMANT A, AUCIELLOT O, RAMESH R, et al. Scanning force microscopy of domain structure in ferroelectric thin films: imaging and control [J]. Nanotechnology, 1997, 8: 38–43.
- [8] COLLA E L, STOLICHNOV I, BRADELY P E, et al. Direct observation of inversely polarized frozen nanodomains in fatigued ferroelectric memory capacitors[J]. Appl Phys Lett, 2003, 82: 1604–1606.
- [9] LIU J S, ZHANG S R, DAI L S, et al. Domain evolution in ferroelectric thin films during fatigue process[J]. J Appl Phys, 2005, 97(10): 1041021–1041024.
- [10] ZHANG Y, CHENG X, ZHANG S. *In-situ* Raman spectroscopic study of domain switching of PLZT ceramics [J]. Appl Phys A-Mater, 2007, 89: 685–693.
- [11] Loudon R. The Raman effect in crystals[J]. Adv Phys, 1964, 13: 423–482.
- [12] LIU M, HSIA K J, SARDELA M R. *In situ* X-Ray diffraction study of electric-field-induced domain switching and phase transition in PZT-5H[J]. J Am Ceram Soc, 2005, 88: 210–215.
- [13] LIU M, HSIA K J. Locking of electric-field-induced non- 180° domain switching and phase transition in ferroelectric materials upon cyclic electric fatigue[J]. Appl Phys Lett, 2003, 83(19): 3978–3980.
- [14] 张颖, 陈志武, 程璇, 等. 原位 XRD 法研究电疲劳过程中铁电陶瓷 PLZT 的畴变[J]. 金属学报, 2004, 40: 1299–1304.
ZHANG Ying, CHEN Zhiwu, CHENG Xuan, et al. Acta Met Sin(in Chinese), 2004, 40: 1299–1304.
- [15] 刘莹, 程璇, 张飒, 等. 原位 XRD 测试 PLZT 铁电陶瓷的电致畴变 [J]. 功能材料, 2014, 45(1): 01078–01081.
LIU Ying, CHENG Xuan, ZHANG Sa, et al. J Funct Mater(in Chinese),

- 2014, 45(1): 01078–01081.
- [16] 王永晔, 张颖, 程璇, 等. 基于 LabVIEW 的电滞回线测试系统的开发[J]. 仪器仪表学报, 2006, 27(5): 501–504.
WANG Yongye, ZHANG Ying, CHENG Xuan, et al. Chin J Sci Instrum(in Chinese), 2006, 27(5):501-504.
- [17] 陈志武. 电疲劳过程中 PLZT 铁电陶瓷畴变的原位观测及电疲劳机理研究[D]. 厦门: 厦门大学, 2003.
CHEN Zhiwu. *In-situ* investigation of domain switching in PLZT ferroelectric ceramics during an electric fatigue process and the study of electric fatigue mechanism in ceramics(in Chinese, dissertation). Xiamen: Xiamen University, 2003.
- [18] 张孝文, 叶楚才, 李成萃. 锆钛比为 50/50 的 PZT 陶瓷极化前后的 X 射线研究[J]. 物理学报, 1979, 28(4): 524–533.
ZHANG Xiaowen, YE Chucai, LI Chengcui. Acta Phys Sin(in Chinese), 1979, 28(4): 524–533.
- [19] JAMES R W. The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays[M]. London: George Bell & Sons, 1959: 33.
- [20] 杨卫. 力电失效学[M]. 北京: 清华大学出版社, 2001: 20–34.